

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-208564

(43)Date of publication of application : 28.07.2000

(51)Int.Cl.

H01L 21/60  
B32B 27/34  
C08G 73/10  
C09J 7/02  
H01B 3/30

(21)Application number : 11-004095

(22)Date of filing : 11.01.1999

(71)Applicant : UBE IND LTD

(72)Inventor : INOUE HIROSHI  
YAMAMOTO TOMOHIKO  
UEKIDO TAKESHI

(54) TAPE FOR LOC

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a tape for LOC(lead-on-chip) having satisfactory handling and punching abilities.

SOLUTION: This tape is constituted, by slitting a polyimide film with adhesive agent provided with adhesive agents on both sides of an aromatic polyimide film, composed of polyimide which has biphenyl tetracarboxylic acids and phenylenediamine as the main components, and having a thickness in the range of 20 to 80  $\mu\text{m}$ , the tension elasticity modulus in the range of 650 to 1,100  $\text{kg/mm}^2$ , the extension range of 45 to 90%, and the tear propagation resistance (Elmendorf) in the range of 550 to 1,500  $\text{g/mm}$ .

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-208564

(P2000-208564A)

(43) 公開日 平成12年7月28日 (2000.7.28)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード (参考)
H 0 1 L 21/60	3 1 1	H 0 1 L 21/60	3 1 1 W
B 3 2 B 27/34		B 3 2 B 27/34	
C 0 8 G 73/10		C 0 8 G 73/10	
C 0 9 J 7/02		C 0 9 J 7/02	Z
H 0 1 B 3/30		H 0 1 B 3/30	G
審査請求 未請求 請求項の数5 O L (全 7 頁)			

(21) 出願番号 特願平11-4095

(22) 出願日 平成11年1月11日 (1999.1.11)

(71) 出願人 000000206

宇部興産株式会社

山口県宇部市西本町1丁目12番32号

(72) 発明者 井上 浩

山口県宇部市西本町一丁目12番32号 宇部  
興産株式会社高分子研究所 (宇部) 内

(72) 発明者 山本 智彦

山口県宇部市大字小串1978番地の10 宇部  
興産株式会社宇部ケミカル工場内

(72) 発明者 上木戸 健

山口県宇部市大字小串1978番地の10 宇部  
興産株式会社宇部ケミカル工場内

(54) 【発明の名称】 LOC用テープ

(57) 【要約】

【課題】 ハンドリングおよび打ち抜き性が良好である  
LOC用テープを提供する。

【解決手段】 ビフェニルテトラカルボン酸類とフェニ  
レンジアミンを主成分とするポリイミドからなり、厚み  
が20-80 $\mu$ m、引張弾性率が650-1100kg  
/mm<sup>2</sup>、伸びが45-90%であり、かつ引き裂き伝  
播抵抗 (エルメンドルフ) が550-1500g/mm  
である芳香族ポリイミドフィルムの両面に接着剤を設け  
た接着剤付きポリイミドフィルムをスリットしてなるL  
OC用テープ。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 ビフェニルテトラカルボン酸二無水物またはその誘導体とフェニレンジアミンとを主成分として製造されたポリイミドからなり、厚みが20-80 $\mu$ mであって、引張弾性率が650-1100kg/mm<sup>2</sup>で、伸びが45-90%であり、かつ引裂き伝播抵抗（エルメンドルフ）が550-1500g/mmである芳香族ポリイミドフィルムの両面に接着剤層を設けた接着剤付きポリイミドシートをスリットしてなるLOC用テープ。

【請求項2】 芳香族ポリイミドフィルムの加熱収縮率が0.002-0.4%であり、比端裂抵抗値が14-25kg/20mm/10 $\mu$ mである請求項1記載のLOC用テープ。

【請求項3】 芳香族ポリイミドフィルムが0.1-5重量%の無機フィラーを含有するものである請求項1記載のLOC用テープ。

【請求項4】 接着剤が、ポリイミド系熱可塑性接着剤あるいはポリイミド系熱硬化性接着剤である請求項1記載のLOC用テープ。

【請求項5】 厚みが20-80 $\mu$ mであって、引張弾性率が650-1100kg/mm<sup>2</sup>で、伸びが45-90%であり、線膨張係数（50-200℃）が $5 \times 10^{-6}$ - $25 \times 10^{-6}$ cm/cm/℃であり、かつ引裂き伝播抵抗（エルメンドルフ）が550-1500g/mmである芳香族ポリイミドフィルムの両面に接着剤層を設けた接着剤付きポリイミドシートをスリットしてなるLOC用テープ。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 この発明は、ポリイミド、例えばビフェニルテトラカルボン酸二無水物またはその誘導体とフェニレンジアミンとを主成分として製造されたポリイミドからなり、大きい引裂き伝播抵抗（エルメンドルフ）を有する芳香族ポリイミドフィルムの両面に接着剤層を設けた接着剤付きポリイミドシートをスリットしてなるLOC用テープに関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 半導体メモリーの記憶容量が増大するに従い、DIP（デュアル・インライン・パッケージ）からLOC（リード・オン・チップ）方式にパッケージが変わってきている。LOC方式ではICチップの上にリードフレームがあり、その間をLOC用テープ（接着剤／絶縁テープ／接着剤の構成）で接着される。このLOCに使用される芳香族ポリイミドは、芳香族テトラカルボン酸成分と芳香族ジアミン成分とから製造されるポリアミック酸を高温に加熱して脱水環化することにより得られる耐熱性や機械的特性の優れたポリマーである。しかしながら、LOC用テープに用いられる芳香族ポリイミドフィルムは、より高精度でより高生産性の要求か

ら、走行安定性（例えば、引き裂き発生の問題）、打ち抜き性が問題とされている。そして、これらは、1つにはポリイミドフィルムの伸びが小さいことに起因することが指摘されている。また、ポリイミドフィルムは、弾性率と伸びとが相反する性質となつて、弾性率の大きいフィルムは伸びが小さく、伸びの大きいフィルムは弾性率が小さいことが知られている。

【0003】 このため、ポリイミドフィルムについて種々の改良がなされた。例えば、特開昭61-264027号公報にはビフェニルテトラカルボン酸二無水物とp-フェニレンジアミンとから得られるポリイミドフィルムを低張力下に再熱処理して寸法安定なポリイミドフィルムを製造する方法が記載されている。また、特公平4-6213号公報には線膨張係数比（送り方向／直行方向）および送り方向の線膨張係数が特定範囲内にあり寸法安定性に優れたポリイミドフィルムが記載されている。さらに、特公昭62-60416号公報、特公昭63-5421号公報、特公昭63-5422号公報には、流延法での製膜時の芳香族ポリアミック酸フィルムの剥離性を改良する方法が記載されている。また、特公平3-20130号公報にはビフェニルテトラカルボン酸類およびピロメリット酸類とフェニレンジアミンおよびジアミノジフェニルエーテルとの3-4成分系ポリイミド膜が記載され、特開平4-198229号公報や特開平4-339835号公報には置換もしくは非置換の含窒素複素環化合物を添加する製造方法が記載されている。しかし、これらの公知技術では、得られる芳香族ポリイミドフィルムは線膨張係数や寸法安定性などの熱特性や引張弾性率は改善されるものの、伸びや引き裂き伝播抵抗（エルメンドルフ）が不十分であったり、逆に耐熱性や引張弾性率が低下する。

【0004】 このため、テトラカルボン酸成分としてピロメリット酸二無水物とベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物あるいはビフェニルテトラカルボン酸二無水物とを組み合わせ、ジアミン成分として直線性ジアミン（例えば、フェニレンジアミン）と屈曲性ジアミン（例えば、ジアミノジフェニルエーテル）とを組み合わせたポリイミドからなるフィルムを使用したTAB用テープや、有機りん化合物を含有させたポリイミドからなる耐屈曲性の改良されたポリイミドフィルム、あるいは端裂抵抗が50-70kgf/20mmのポリイミドフィルムからなる打ち抜き性に優れたフィルムが提案されている。

【0005】 すなわち、第1のTAB用テープは特開平5-263049号公報に、第2の耐屈曲性の改良されたポリイミドフィルムは特開平2-28257号公報に、さらに第3の打ち抜き性に優れたフィルムは特開平6-334110号公報にそれぞれ記載されている。しかし、これら公知のポリイミドフィルムは、伸びや引き裂き伝播抵抗（エルメンドルフ）が不十分であったり、

引張強度や引張弾性率が小さく耐屈曲性も不十分であったり、あるいは接着性が不十分であったりしていずれも満足のいくものではない。

【0006】従って、従来の技術では、引張弾性率、伸びおよび引き裂き伝播抵抗（エルメンドルフ）を併せて満足する芳香族ポリイミドフィルムを得ることはできなかったのである。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】この発明の目的は、基板フィルムとして、寸法精度が高く、引張弾性率、伸びおよび引き裂き伝播抵抗（エルメンドルフ）を併せて満足する芳香族ポリイミドフィルムを使用することにより、ハンドリングおよび打ち抜き性が良好なLOC用テープを提供することにある。

【0008】

【課題を解決するための手段】この発明は、ビフェニルテトラカルボン酸二無水物またはその誘導体とフェニレンジアミンとを主成分として製造されたポリイミドからなり、厚みが20-80 $\mu$ mであって、引張弾性率が650-1100kg/mm<sup>2</sup>で、伸びが45-90%であり、かつ引裂き伝播抵抗（エルメンドルフ）が550-1500g/mmである芳香族ポリイミドフィルムの両面に接着剤層を設けた接着剤付きポリイミドシートをスリットしてなるLOC用テープに関するものである。

【0009】また、この発明は、厚みが20-80 $\mu$ mであって、引張弾性率が650-1100kg/mm<sup>2</sup>で、伸びが45-90%であり、線膨張係数（50-200℃）が5 $\times$ 10<sup>-6</sup>-25 $\times$ 10<sup>-6</sup>cm/cm/℃であり、かつ引裂き伝播抵抗（エルメンドルフ）が550-1500g/mmである芳香族ポリイミドフィルムの両面に接着剤層を設けた接着剤付きポリイミドシートをスリットしてなるLOC用テープに関するものである。

【0010】

【発明の実施の形態】以下にこの発明の好ましい態様を列記する。

1) 芳香族ポリイミドフィルムの加熱収縮率が0.002-0.4%であり、比端裂抵抗値が14-25kg/20mm/10 $\mu$ mである上記のLOC用テープ。

2) 芳香族ポリイミドフィルムが0.1-5重量%の無機フィラーを含有するものである上記のLOC用テープ。

3) 接着剤が、ポリイミド系熱可塑性接着剤あるいはポリイミド系熱硬化性接着剤である上記のLOC用テープ。

【0011】この発明において、ビフェニルテトラカルボン酸成分としては、2, 3, 3', 4'-ビフェニルテトラカルボン酸、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸、これらのハロゲン化物、それらの二無水物、またはそれらのエステルが使用できるが、なかでも3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二

無水物が好適に用いられる。ビフェニルテトラカルボン酸成分と併用可能な芳香族テトラカルボン酸成分としては、ピロメリット酸二無水物を挙げることができる。ピロメリット酸二無水物を併用する場合は、テトラカルボン酸成分中50モル%以下であることが好ましい。

【0012】この発明の効果を損なわない範囲で他の芳香族テトラカルボン酸成分を使用してもよい。このような芳香族テトラカルボン酸成分としては、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、2, 2', 3, 3'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、2, 2-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)プロパン二無水物、2, 2-ビス(2, 3-ジカルボキシフェニル)プロパン二無水物、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)エーテル二無水物、ビス(2, 3-ジカルボキシフェニル)エーテル二無水物、2, 3, 6, 7-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、1, 4, 5, 8-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、2, 2-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)-1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロパン二無水物、2, 2-ビス(2, 3-ジカルボキシフェニル)-1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロパン二無水物などを挙げることができる。

【0013】この発明で使用するフェニレンジアミンは、o-フェニレンジアミン、m-フェニレンジアミン、そしてp-フェニレンジアミンのいずれであってもよい。この発明の効果を損なわない範囲で他の芳香族ジアミンを使用してもよい。このような芳香族ジアミン成分としては、ジアミノジフェニルエーテル、4, 4'-ジアミノジフェニルプロパン、4, 4'-ジアミノジフェニルエタン、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]プロパン、2, 2'-ビス[4-(アミノフェノキシ)フェニル]-1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロパン、ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]エーテルなどを挙げることができる。

【0014】この発明において、芳香族ポリイミドフィルムは、厚みが20-80 $\mu$ mであり、好ましくは25-75 $\mu$ mである。芳香族ポリイミドフィルムの厚みがこの下限より小さいと自己支持性が低く、また上限より大きいと高精度の要求されるLOC用テープとして好ましくない。また、芳香族ポリイミドフィルムの引張弾性率、伸びおよび引き裂き伝播抵抗（エルメンドルフ）の値が前記の範囲外であると、この発明の目的を達成することができない。また、芳香族ポリイミドフィルムの線膨張係数、加熱収縮率、比端裂抵抗値が前記範囲内であると、種々の環境下においた場合の寸法安定性、ハンドリングが良好である。

【0015】この発明における芳香族ポリイミドフィルムは、例えば以下のようにして製造することができる。好適には先ず前記ビフェニルテトラカルボン酸類とフェ



ニレンジアミン、好適にはパラフェニレンジアミンとをN,N-ジメチルアセトアミドやN-メチル-2-ピロリドンなどのポリイミドの製造に通常使用される有機極性溶媒中で、好ましくは10～80℃で1～30時間重合して、ポリマーの対数粘度（測定温度：30℃、濃度：0.5g/100ml溶媒、溶媒：N-メチル-2-ピロリドン）が0.1～5、ポリマー濃度が15～25重量%であり、回転粘度（30℃）が500～4500ポイズであるポリアミック酸（イミド化率：5%以下）溶液を得る。

【0016】次いで、例えば上記のようにして得られたポリアミック酸溶液に、好適には、1,2-ジメチルイミダゾールを、特にポリアミック酸のアミック酸単位に対して0.005～2倍当量、好適には0.005～0.8倍当量、特に0.02～0.8倍当量程度の量含有させる。1,2-ジメチルイミダゾールの一部を、イミダゾール、ベンズイミダゾール、N-メチルイミダゾール、N-ベンジル-2-メチルイミダゾール、2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、5-メチルベンズイミダゾール、イソキノリン、3,5-ジメチルピリジン、3,4-ジメチルピリジン、2,5-ジメチルピリジン、2,4-ジメチルピリジン、4-n-プロピルピリジンなどで置き換えてもよい。

【0017】上記のポリアミック酸溶液に、リン化合物を、好ましくはこのポリアミック酸100重量部に対して0.01～5重量部、特に0.01～3重量部、その中でも特に0.01～1重量部の割合で有機リン化合物、好適には（ポリ）リン酸エステル、リン酸エステルのアミン塩あるいは無機リン化合物を添加し、さらに好適には無機フィラーを、特にポリアミック酸100重量部に対して0.1～3重量部のコロイダルシリカ、窒化珪素、タルク、酸化チタン、磷酸カルシウム（好適には平均粒径0.005～5μm、特に0.005～2μm）を添加してポリイミド前駆体溶液組成物を得る。

【0018】このポリイミド前駆体溶液組成物を平滑な表面を有するガラスあるいは金属製の支持体表面に連続的に流延して前記溶液の薄膜を形成し、その薄膜を乾燥する際に、乾燥条件を調整して、温度：100～200℃、時間：1～30分間乾燥することにより、固化フィルム中、前記溶媒及び生成水分からなる揮発分含有量が30～50重量%程度、イミド化率が5～80%程度である長尺状固化フィルムを形成し、上記固化フィルムを支持体表面から剥離する。前記の固化フィルムを、さらに乾燥条件を調整して、温度：室温（25℃）～250℃、時間：0.5～30分間程度乾燥する乾燥工程を加えてもよい。これらの乾燥工程の少なくとも一部で固化フィルムの幅方向の両端縁を把持し延伸した状態を保つことによって、幅方向（TD）および両方向（MD、TD）に少し延伸してもよい。

【0019】次いで、固化フィルムの両面にアミノシラン系、エポキシシラン系あるいはチタネート系などの公知の表面処理剤を含有する表面処理液を塗布または噴霧した後、さらに乾燥することもできる。表面処理剤としては、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-β-（アミノエチル）-γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-（アミノカルボニル）-γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-[β-（フェニルアミノ）-エチル]-γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-フェニル-γ-アミノプロピルトリメトキシシランなどのアミノシラン系や、β-（3,4-エポキシシクロヘキシル）-エチルトリメトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシランなどのエポキシシラン系や、イソプロピルトリクミルフェニルチタネート、ジクミルフェニルオキシアセテートチタネートなどのチタネート系などの耐熱性表面処理剤が使用できる。表面処理液は前記の表面処理剤を0.5～50重量%含む低級アルコール、アミド系溶媒などの有機極性溶媒溶液として使用できる。表面処理液はグラビアコート法、シルクスクリーン、浸漬法などを使用して均一に塗布して薄層を形成することが好ましい。

【0020】この発明における芳香族ポリイミドフィルムは、次いで、好適にはキュア炉内において固化フィルムを高温に加熱して乾燥およびイミド化を完了させて得ることができる。すなわち、前記のようにして得られた固化フィルムを必要であればさらに乾燥して、乾燥フィルムの幅方向の両端縁を把持した状態で、キュア炉内における最高加熱温度：400～500℃程度、特に475～500℃程度の温度が0.5～30分間となる条件で該乾燥フィルムを加熱して乾燥およびイミド化して、残揮発物量0.4重量%以下程度で、イミド化を完了することによって長尺状の芳香族ポリイミドフィルムを好適に製造することができる。

【0021】上記のようにして得られた芳香族ポリイミドフィルムを、好適には低張力下あるいは無張力下に200～400℃程度の温度で加熱して応力緩和処理して、巻き取る。

【0022】前記の芳香族ポリイミドフィルムは、前述のポリアミック酸にイミド化触媒を加えたポリイミド前駆体溶液を使用し、溶液流延法によって長尺状のフィルムとすることによって、引張弾性率、伸びおよび引裂き伝播抵抗（エルメンドルフ）がこの発明で規定する値をとるようにすることができる。

【0023】前記の芳香族ポリイミドフィルムから、そのままあるいは表面処理剤で処理していない場合は、好適にはコロナ放電処理、低温あるいは常圧プラズマ放電処理などの表面処理を施した後、接着性を改良した芳香族ポリイミドフィルムの両面に熱可塑性接着剤溶液あるいは熱硬化性接着剤溶液を塗布・乾燥して、あるいはこ

れら接着剤のシート（未硬化状態）を積層して接着剤層を設け、この接着剤この接着剤付きポリイミドシートをスリットし、LOC用テープを得ることができる。また、接着剤付きポリイミドシートの接着剤層の面にカバーフィルムを積層し、テープ状にスリットすることによって両面をカバーフィルムで覆ったLOC用テープを得ることができる。

【0024】この発明における接着剤は、ポリイミド系の熱可塑性接着剤もしくはポリイミド系の熱硬化性接着剤からなる。また、この接着剤層は接着剤付きのテープ状フィルムとして設けてもよくあるいはテープ状フィルムを巻き付けた後、接着剤を塗布あるいは接着剤シートを張り合わせて接着剤付きテープを設けてもよい。

【0025】前記ポリイミド系熱可塑性接着剤としては、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ポリエステルイミドなどのポリマー鎖中にイミド結合を含有するポリイミド系ポリマーが挙げられる。前記ポリイミド系熱硬化性接着剤としては、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ポリエステルイミド、ポリイミドシロキサンなどのポリマー鎖中にイミド結合を含有するポリマーと熱硬化性樹脂との組み合わせが一般的である。熱硬化性樹脂としては、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、アクリレート樹脂などの熱硬化性樹脂、さらにビスマレイミド樹脂のように末端または側鎖に反応性の官能基を有するポリイミドオリゴマーなどが挙げられる。

【0026】前記ポリイミド系熱可塑性接着剤および硬化後のポリイミド系熱硬化性接着剤の引張弾性率（25℃）が5-450 kg/mm<sup>2</sup>、特に10-400 kg/mm<sup>2</sup>であることが好ましい。前記ポリイミド系熱可塑性接着剤および硬化後のポリイミド系熱硬化性接着剤はポリイミドを5重量%以上、特に10重量%以上使用することが好ましい。ポリイミド系接着剤がシランカップリング剤またはチタネート系カップリング剤を含んでもよい。これらの混合量は接着剤100重量部に対して、0.1-6重量部、特に0.3-5重量部が好適である。シランカップリング剤の種類としては、アミノシラン、エポキシシラン、チオールシランなどが好適である。

【0027】前記接着剤層の厚みは、通常5-35 μm程度であることが好ましい。接着剤には無機フィラー

（好適には微細な無機フィラー）を含有させてもよい。無機フィラーを含有させると剥離強度が大きくなる傾向にある。接着剤フィルムを使用する場合には、耐熱性のフィルム、例えば耐溶剤性と比較的高い融点とを合わせもつ熱可塑性樹脂フィルム、例えばポリエステルフィルムを支持フィルムとして使用し、支持フィルム上に接着剤溶液を所定巾に塗布・乾燥後、接着剤層の両面を保護フィルム（一方は支持フィルム）で積層し、片方の保護フィルムを引き剥がしながら所定巾のポリイミドフィル

ムと積層する。次いで、保護フィルムで覆った接着剤付きポリイミドシートをスリットしてLOC用テープを得ることができる。

【0028】前記のスリットして得たLOC用テープをパンチングで短冊形に打ち抜いて、ICチップとリードフレームとの間に挟み150-300℃、0.3-40 kg/cm<sup>2</sup>で0.4-200秒間プレスし、リードフレームをICチップの上に固定する。固定したリードフレームとICチップとの間をワイヤーボンディングでつなぎ、トランスファーマーモルディングで、パッケージして半導体チップを製造することができる。

【0029】

【実施例】以下にこの発明の実施例を示す。いかの記載にいて、部は重量部を示す。以下の各例において、ポリイミドフィルムの物性測定は以下の方法によって行った。なお、以下の測定値は特記した場合を除き25℃での測定値である。

【0030】

伸び：ASTM D882-83に従って測定（MD）

引張弾性率：ASTM D882-83に従って測定（MD）

引裂き伝播抵抗（エルメンドルフ）：ASTM D1922-67に従って測定（MD）

【0031】引張強度：ASTM D882-83に従って測定（MD）

加熱収縮率：JIS C2318に従って測定（200℃）

絶縁破壊電圧：JIS C2318に従って測定（MD）

【0032】端裂抵抗値：JIS C2318に従って測定（MD）

端裂抵抗値（あるいは比端裂抵抗値）はJIS C2318に従って測定した試料（5個）の端裂抵抗値（あるいは比端裂抵抗値）の平均値を意味する。具体的には、定速緊張形引張試験機の上部厚さ1.00±0.05 mmのV字形切り込み板試験金具の中心線を上部つかみの中心線に一致させ、切り込み頂点と下部つかみとの間隔を約30 mmになるように柄を取り付ける。幅約20 mm、長さ約200 mmの試験片を金具の穴部に通して二つに折り合わせて試験機の下部のつかみにはさみ、1分間につき約200 mmの速さで引張り、引き裂けたときの力を端裂抵抗という。試験片を縦方向及び横方向からそれぞれ全幅にわたって5枚とり端裂抵抗の平均値を求め、端裂抵抗値として示す。比端裂抵抗値はフィルム厚み当たり（10 μm換算）の端裂抵抗値を示す。

【0033】線膨張係数（50-200℃）測定：300℃で30分加熱して応力緩和したサンプルをTMA装置（引張りモード、2 g荷重、試料長10 mm、20℃/分）で測定

【0034】引き裂き強さ：7.5 cm×7.5 cmの正方形に切り取ったフィルムの1辺に、かみそり刃を使



用して5cmの長さの切れ込みを入れた。その切れ込みの両側を引張試験機で、200mm/分の速度で引張ったときの荷重を測定し、引き裂きが生じたときの荷重を引き裂き強さ(g)とした。

耐屈曲回数(MIT): ASTM D2176に従って測定(MD)

打ち抜き性:パンチングでLOC用テープを短冊形に打ち抜いた際フィルムに座屈や変形、切れなどが生じず問題ないものを良好、少し問題があるものをやや不良、問題があるものを不良とした。

接着強度:180°剥離強度を引張速度:50mm/分で測定した。

#### 【0035】参考例1

反応容器に、N,N-ジメチルアセトアミド100重量部に、p-フェニレンジアミン5.897重量部および3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物16.019重量部を加えて、窒素気流下、40℃で3時間攪拌し、重合反応させてポリマー濃度18重量%、ポリマーの対数粘度(測定温度:30℃、濃度:0.5g/100ml溶媒、溶媒:N,N-ジメチルアセトアミド)が1.3、溶液粘度1800ポイズ(30℃、回転粘度計)のポリアミック酸溶液を得た。このポリアミック酸溶液に、ポリアミック酸100重量部に対して0.1重量部の割合でモノステアリルリン酸エステルトリエタノールアミン塩および0.5重量部の割合(固形分基準)で平均粒径0.08μmのコロイダルシリカを添加して均一に混合してポリアミック酸溶液組成物を得た。さらに、このポリアミック酸溶液組成物に、ポリアミック酸100重量部に対して1,2-ジメチルイミダゾール2.39kg(ポリアミック酸単位に対して0.1倍当量)を添加し、40℃で2時間攪拌し、ポリイミド前駆体溶液組成物を得た。

【0036】このポリイミド前駆体溶液組成物を、Tダイのスリットより連続的に押出し、平滑な金属支持体上に薄膜を形成した。この薄膜を140℃で20分加熱後、支持体から剥離させ、長尺状固化フィルムを形成した。このフィルムの両端を拘束させた状態で、連続的に加熱炉を通過させた。この際、加熱炉内の滞留時間を13分、加熱炉内の最高加熱温度を480℃とした。このようにして長尺状で厚み50μmの芳香族ポリイミドフィルムを得た。

【0037】この芳香族ポリイミドフィルムの物性を次に示す。

引張弾性率(MD):780kg/mm<sup>2</sup>

伸び(MD):60%

引裂き伝播抵抗(エルメンドルフ)(MD):720g/mm

引張強度(MD):54kg/mm<sup>2</sup>

加熱収縮率(200℃):0.05%

絶縁破壊電圧:9.5kV

端裂抵抗値(MD):82kg/20mm

線膨張係数(50~200℃): $1.7 \times 10^{-5} \text{ cm/cm/}^\circ\text{C}$

引き裂き強さ(MD):26g

耐屈曲回数(×104回):>10

(MIT)

#### 【0038】参考例2

参考例1において、長尺状固化フィルムの両面に、アミノシラン表面処理剤のN,N-ジメチルアセトアミド溶液を均一に塗布した後乾燥して、表面処理した乾燥フィルムを得た後、フィルムの両端を拘束させた状態で連続的に加熱炉を通過させた以外は参考例1と同様にして、長尺状で厚み50μmの芳香族ポリイミドフィルムを得た。

【0039】この芳香族ポリイミドフィルムの物性を次に示す。

引張弾性率(MD):790kg/mm<sup>2</sup>

伸び(MD):56%

引裂き伝播抵抗(エルメンドルフ)(MD):710g/mm

引張強度(MD):48kg/mm<sup>2</sup>

加熱収縮率(200℃):0.05%

絶縁破壊電圧:9.5kV

端裂抵抗値(MD):83kg/20mm

線膨張係数(50~200℃): $1.5 \times 10^{-5} \text{ cm/cm/}^\circ\text{C}$

引き裂き強さ(MD):28g

耐屈曲回数(×104回):>10

(MIT)

#### 【0040】参考例3

反応容器中でN-メチル-2-ピロリドン(2,3,3',4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物と2,2'-ビス(4-アミノフェノキシ)プロパン(60モル%)とジアミノポリシロキサン(40モル%、Mw=950)とからポリイミドシロキサンを得た。このポリイミドシロキサンは、フィルムとして引張弾性率が57kg/mm<sup>2</sup>で、Tgが190℃であった。

#### 【0041】参考例4

反応容器中でN-メチル-2-ピロリドン(2,3,3',4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物と2,2'-ビス(4-アミノフェノキシ)プロパン(78モル%)とジアミノポリシロキサン(22モル%、Mw=950)とからポリイミドシロキサンを得た。このポリイミドシロキサンは、フィルムとして引張弾性率が115kg/mm<sup>2</sup>で、Tgが235℃であった。

#### 【0042】実施例1

参考例1で得たポリイミドフィルムの片面に熱可塑性ポリイミド接着剤溶液(参考例3で得られたポリイミドシ

ロキサンのテトラヒドロロン溶液)を乾燥後の厚みが20  $\mu\text{m}$ になるように塗布し、200℃で乾燥し、もう一方の面にも同様の同様に熱可塑性ポリイミド接着剤溶液を塗布、乾燥して、両面に接着剤を設けた接着剤付きポリイミドシートを得た。このシートを20mm巾にスリットして、LOC用テープを得た。このLOC用テープをパンチングで打ち抜いた短冊とリードフレーム(42アロイ)とを220℃、10kg/cm<sup>2</sup>、2秒の加熱条件で積層して積層体を得た。得られた積層体の接着強度および積層体作成時の打ち抜き性を次に示す。

接着強度: 0.9 kg/cm

打ち抜き性: 良好

#### 【0043】実施例2

参考例2で得たポリイミドフィルムの片面に、熱可塑性ポリイミド接着剤溶液として、参考例4で得られたポリイミドシロキサン85部、エポキシ樹脂(油化シェル社製、エピコート828)10部、およびBTレジン(三菱ガス化学社製、BT2170)5部をテトラヒドロロンに溶解した溶液(固形分濃度: 25重量%)を使用した。他は実施例1と同様にして、LOC用テープを得た。このLOC用テープをパンチングで打ち抜いた短冊とリードフレーム(42アロイ)とを220℃、10kg/cm<sup>2</sup>、2秒の加熱条件で積層して積層体を得た。得られた積層体の接着強度および積層体作成時の打ち抜き性を次に示す。

接着強度: 1.2 kg/cm

打ち抜き性: 良好

#### 【0044】実施例3

参考例1で得たポリイミドフィルムの両面を常法によって低温プラズマ処理したポリイミドフィルムを使用した。他は実施例1と同様にして、LOC用テープを得た。このLOC用テープをパンチングで打ち抜いた短冊とリードフレーム(42アロイ)とを220℃、10kg/cm<sup>2</sup>、2秒の加熱条件で積層して積層体を得た。得られた積層体の接着強度および積層体作成時の打ち抜き性を次に示す。

接着強度: 1.1 kg/cm

打ち抜き性: 良好

#### 【0045】比較参考例1

1, 2-ジメチルイミダゾールを添加しなかった他は参考例1と同様にして、厚み50  $\mu\text{m}$ の改質された芳香族ポリイミドフィルムを得た。この芳香族ポリイミドフィルムの物性をまとめて次に示す。

引張弾性率(MD): 850 kg/mm<sup>2</sup>

伸び(MD): 43%

引裂き伝播抵抗(エルメンドルフ)(MD): 510 g/mm

引張強度(MD): 48 kg/mm<sup>2</sup>

加熱収縮率(200℃): 0.07%

絶縁破壊電圧: 10.9 kV

端裂抵抗値(MD): 66 kg/20mm

線膨張係数(50~200℃):  $1.4 \times 10^{-5} \text{ cm/cm/}^\circ\text{C}$

引き裂き強さ(MD): 16 g

耐屈曲回数( $\times 104$ 回): 5.6

#### 【0046】比較例1

比較参考例1で得られた芳香族ポリイミドフィルムを使用した他は実施例1と同様にして、LOC用テープを得た。このLOC用テープをパンチングで打ち抜いた短冊とリードフレーム(42アロイ)とを220℃、10kg/cm<sup>2</sup>、2秒の加熱条件で積層して積層体を得た。

接着強度: 1.5 kg/cm

打ち抜き性: やや不好

#### 【0047】

【発明の効果】この発明は以上説明したように構成されているので、以下に記載のような効果を奏する。この発明のLOC用テープは、使用する芳香族ポリイミドフィルムが引張弾性率と伸びおよび引き裂き伝播抵抗(エルメンドルフ)とをいずれも高いレベルで併せもつベース基材フィルムとして良好な支持性と、耐引き裂き性および耐屈曲性を有しているので、ハンドリングおよび打ち抜き性が良好であり、しかも実用上問題のない接着強度を有しており、高精度での加工が可能である。